

25.08.2004

日 本 国 特 許 庁  
JAPAN PATENT OFFICE

REC'D 16 SEP 2004

WIPO

PCT

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出 願 年 月 日            2 0 0 3 年   8 月 2 1 日  
Date of Application:

出 願 番 号            特 願 2 0 0 3 - 2 9 7 0 3 5  
Application Number:

[ST. 10/C] :            [ J P 2 0 0 3 - 2 9 7 0 3 5 ]

出      願      人            日 本 電 気 株 式 会 社  
Applicant(s):

CERTIFIED COPY OF  
PRIORITY DOCUMENT

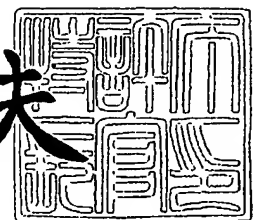
Best Available Copy

PRIORITY DOCUMENT  
SUBMITTED OR TRANSMITTED IN  
COMPLIANCE WITH  
RULE 17.1(a) OR (b)

2 0 0 4 年   1 月 2 6 日

特許庁長官  
Commissioner,  
Japan Patent Office

今 井 康 夫



【書類名】 特許願  
【整理番号】 34103792  
【提出日】 平成15年 8月21日  
【あて先】 特許庁長官  
【国際特許分類】 H01M 8/10  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 秋山 永治  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 吉武 務  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 眞子 隆志  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 木村 英和  
【発明者】  
    【住所又は居所】 東京都港区芝五丁目 7 番 1 号 日本電気株式会社内  
    【氏名】 久保 佳実  
【特許出願人】  
    【識別番号】 000004237  
    【氏名又は名称】 日本電気株式会社  
【代理人】  
    【識別番号】 100110928  
    【弁理士】  
    【氏名又は名称】 速水 進治  
    【電話番号】 03-5784-4637  
【手数料の表示】  
    【予納台帳番号】 138392  
    【納付金額】 21,000円  
【提出物件の目録】  
    【物件名】 特許請求の範囲 1  
    【物件名】 明細書 1  
    【物件名】 図面 1  
    【物件名】 要約書 1  
    【包括委任状番号】 0110433

**【書類名】 特許請求の範囲****【請求項 1】**

燃料極、酸化剤極およびこれらに挟持される電解質膜を備える燃料電池と、  
前記燃料極に燃料を供給する燃料供給系と、  
前記燃料供給系に配設され、気液分離フィルタを具備するガス排出部と、  
を備え、  
前記気液分離フィルタは、二酸化炭素選択透過性を有する非多孔質膜を含むことを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 2】**

請求項 1 に記載の燃料電池システムにおいて、  
前記気液分離フィルタは、多孔質基材と、該多孔質基材の表面に二酸化炭素選択透過材料がコーティングされてなる前記非多孔質膜とを含むことを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 3】**

請求項 1 または 2 に記載の燃料電池システムにおいて、  
前記気液分離フィルタは、一対の多孔質基材に前記非多孔質膜が挟持された構造を有することを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 4】**

請求項 1 乃至 3 いずれかに記載の燃料電池システムにおいて、  
前記非多孔質膜の厚みが、 $5\ \mu\text{m}$  以下であることを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 5】**

請求項 1 乃至 4 いずれかに記載の燃料電池システムにおいて、  
前記非多孔質膜は、スピンコート法、ディップ法、刷毛塗り法またはプラズマ法により形成された膜であることを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 6】**

請求項 1 乃至 5 いずれかに記載の燃料電池システムにおいて、  
前記非多孔質膜は、フッ素樹脂を含むことを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 7】**

請求項 6 に記載の燃料電池システムにおいて、  
前記フッ素樹脂は、フルオロオレフィン、ポリフルオロアルキルアクリレートまたはこれらを重合単位として含む共重合体であることを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 8】**

請求項 6 に記載の燃料電池システムにおいて、  
前記フッ素樹脂は、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニルまたはポリフッ化エチレンプロピレンであることを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 9】**


請求項 6 に記載の燃料電池システムにおいて、  
前記フッ素樹脂は、ポリカルボン酸フルオロアルキルエステルであることを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 10】**

請求項 1 乃至 9 いずれかに記載の燃料電池システムにおいて、  
前記ガス排出部は、  
前記気液分離フィルタを介して前記燃料供給系と連通する室を備え、  
前記室に、前記気液分離フィルタを透過したガスを酸化する触媒が設けられたことを特徴とする燃料電池システム。

**【請求項 11】**

請求項 1 乃至 10 いずれかに記載の燃料電池システムにおいて、  
前記ガス排出部は、  
気液分離フィルタの設けられた通気口を有し前記気液分離フィルタを介して前記燃料供給系と連通する第一の室と、  
前記第一の室と連通し、前記第一の室から送出されたガスを酸化する触媒を具備する第二



の室と、  
を備えることを特徴とする燃料電池システム。

【書類名】明細書

【発明の名称】燃料電池システム

【技術分野】

【0001】

本発明は、電池内部で発生した二酸化炭素を外部に放出する手段を備えた燃料電池システムに関する。

【背景技術】

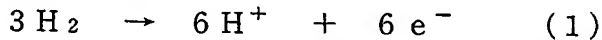
【0002】

燃料電池は、燃料極および酸化剤極と、これらの間に設けられた電解質から構成され、燃料極には燃料が、酸化剤極には酸化剤が供給されて電気化学反応により発電する。燃料としては、一般的には水素が用いられるが、近年、安価で取り扱いの容易なメタノールを燃料として直接利用する直接型の燃料電池の開発も盛んに行われている。

【0003】

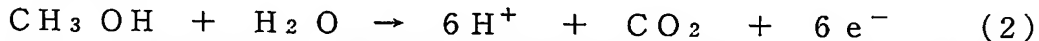
燃料として水素を用いた場合、燃料極での反応は以下の式(1)のようになる。

【0004】



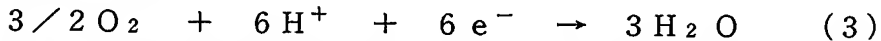
燃料としてメタノールを用いた場合、燃料極での反応は以下の式(2)のようになる。

【0005】



また、いずれの場合も、酸化剤極での反応は以下の式(3)のようになる。

【0006】



特に、直接型の燃料電池では、メタノール水溶液から水素イオンを得ることができるので、改質器等が不要になり、燃料電池の小型化および実用化に向けての利点が多い。また、液体のメタノール水溶液を燃料とするため、エネルギー密度が非常に高いという特徴がある。

【0007】

このような直接型の燃料電池においては、上記式(2)に示すように、燃料極では電気化学反応によって二酸化炭素が発生する。この二酸化炭素の気泡が燃料極近傍に滞留すると、燃料の供給が阻害され発電効率が低下するとともに、有効な触媒の表面を減少させて出力の低下が生じ、燃料電池の性能低下をもたらす要因となる。また、二酸化炭素を除去しないで燃料電池の運転を続けると、燃料室内の圧力が高まり、液体燃料の液漏れや電池性能低下を引き起こす原因ともなる。

【0008】

こうした特許文献1には、炭酸ガスおよび液体燃料を分離し、燃料極から生成される炭酸ガスを選択的に燃料容器外に排出する分離膜を備えた燃料電池が記載されている。同文献の段落0025には、この分離膜の構成として、「炭酸ガスと液体燃料とを分離できるものであれば特に制限されずに使用することができる。例えば、多孔質体を用いることができ、メタノール電池の場合においては、二酸化炭素の分子径よりも大きく、メタノールの分子径よりも小さな細孔径の多孔質体を用いることが好ましく、具体的には0.05 μm～4.00 μm程度の細孔径の多孔質体を用いることが好ましい。」と記載されている。

また、同文献の実施例(段落0040)には、「本発明に係る分離膜として、厚さ70 μm、細孔径0.1 μm、気孔率68%のポリエチレンテレフタレート(PTFE)からなる多孔質体を準備した。」と記載されている。

【0009】

【特許文献1】特開2001-102070号公報 請求項1、段落0025、段落0040

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

## 【0010】

しかしながら、上記文献記載の従来の燃料電池では、液体燃料と二酸化炭素を分離できるものの二酸化炭素とそれ以外のガス成分とを分離することが困難であり、この点で改善の余地を有していた。たとえば、上記文献のように多孔質 PTFE を用いた場合、燃料のメタノールの蒸気が分離膜を通して揮発し、燃料の損失が生じることとなる。同文献の段落 0025 には、「・・・メタノールの分子径よりも小さな細孔径の多孔質体を用いることが好ましく、具体的には  $0.05\mu\text{m} \sim 4.00\mu\text{m}$  程度の細孔径の多孔質体を用いることが好ましい。」と記載されているが、 $0.05\mu\text{m} \sim 4.00\mu\text{m}$  程度の細孔径では、メタノール（気体）の分子径よりも大きく、メタノールガスの放出を抑制することは困難である。

## 【0011】

また、燃料電池の系内には、燃料電池の電気化学反応により生じた副生成物、たとえば、ギ酸、ギ酸メチル、ホルムアルデヒドなどが含まれており、これらが二酸化炭素と同時に系外へ放出されるという課題を有していた。

## 【0012】

本発明は上記事情に鑑みてなされたものであり、その目的とするところは、燃料の損失を抑制し、燃料電池内で発生した副生成物の放出を抑制しつつ、二酸化炭素を電池の外部へ選択的に放出する燃料電池システムを提供することにある。

## 【課題を解決するための手段】

## 【0013】

本発明によれば、燃料極、酸化剤極およびこれらに挟持される電解質膜を備える燃料電池と、前記燃料極に燃料を供給する燃料供給系と、前記燃料供給系に配設され、気液分離フィルタを具備するガス排出部と、を備え、前記気液分離フィルタは、二酸化炭素選択透過性を有する非多孔質膜を含むことを特徴とする燃料電池システムが提供される。

## 【0014】

この本発明によれば、メタノール等の燃料の気体分子の透過を抑制し、燃料電池内で発生した副生成物の放出を抑制しつつ、二酸化炭素を電池の外部へ選択的に放出することができる。たとえば燃料としてメタノール等の液体燃料を用いた場合、その蒸気が燃料外部へ揮散することを抑制することができる。このため、燃料の損失を抑制し、エネルギー効率を向上させることができる。また、副生成物の放出を抑制できるので、環境対応性にも優れる。

## 【0015】

気液分離フィルタは、多孔質基材と、該多孔質基材の表面に二酸化炭素選択透過材料がコーティングされてなる前記非多孔質膜とを含む構成とすることができる。前記非多孔質膜は、二酸化炭素を効率良く透過させることが望まれるため、厚みのある程度薄くすることが好ましい。たとえば、平均厚みを、好ましくは  $5\mu\text{m}$  以下、より好ましくは  $1\mu\text{m}$  以下とする。このような薄膜とする場合、多孔質 PTFE フィルタのように成形で作製することは困難である。そこで上記構成では、多孔質基材の表面に二酸化炭素選択透過材料をコーティングしてなる非多孔質膜を用いている。この構成によれば、多孔質基材を気液分離部として機能させ、ここを透過した気体のうち二酸化炭素が、非多孔質膜により選択的に透過するようにすることができる。

## 【0016】

気液分離フィルタは、一対の多孔質基材に上記非多孔質膜が挟持された構造とすることもできる。このようにすれば、非多孔質膜の表面が多孔質基材で保護され、耐久性を向上させることができる。

## 【0017】

非多孔質膜は、スピンコート法、ディップ法、刷毛塗り法またはプラズマ法により形成された膜とすることができる。こうすることにより、二酸化炭素を効率良く透過させることができる程度に膜厚を薄くでき、膜厚均一性や膜質も良好となる。

## 【0018】

非多孔質膜は、たとえば、フッ素樹脂を含む構成とすることができる。フッ素樹脂としては、具体的には、ポリテトラフルオロエチレン、ポリフッ化ビニルまたはポリフッ化エチレンプロピレン等のフルオロオレフィン、ポリカルボン酸フルオロアルキルエステル等のポリフルオロアルキルアクリレート、および、これらを重合単位として含む共重合体等が挙げられる。こうした樹脂を用いることにより、優れた二酸化炭素選択透過性および良好な成膜性が得られる。

#### 【0019】

気液分離フィルタは、燃料容器、燃料供給管等からなる燃料供給系のいずれかの場所に設けられる。その一部が燃料と接し、かつ、他の一部が燃料電池システムの外部に露出している位置に設けることが好ましい。

#### 【0020】

本発明において、ガス排出部は、前記気液分離フィルタを介して前記燃料供給系と連通する室を備えた構成とし、前記室に、前記気液分離フィルタを透過したガスを酸化する触媒が設けられた構成とすることができる。また、ガス排出部は、気液分離フィルタの設けられた通気口を有し前記気液分離フィルタを介して前記燃料供給系と連通する第一の室と、前記第一の室と連通し、前記第一の室から送出されたガスを酸化する触媒を具備する第二の室とを備える構成とすることができる。こうすることにより、メタノール等の燃料ガスや電池内で発生した副生成物（ギ酸、ギ酸メチル、ホルムアルデヒドなど）等が気液分離フィルタを透過した場合であっても、これらのガスが触媒により酸化されて燃料電池システム外部へ放出される。このため、環境負荷を低減することができる。ここで用いる触媒としては、たとえば、Pt、Ti、Cr、Fe、Co、Ni、Cu、Zn、Nb、Mo、Ru、Pd、Ag、In、Sn、Sb、W、Au、Pb、Biのうちの少なくとも一種を含む金属、合金、またはそれらの酸化物を用いることができる。なお、触媒によるガスの酸化を促進するため、酸化促進手段を設けても良い。酸化促進手段は、たとえば、ガスまたは触媒を加熱する加熱部等を具備した構成とすることができる。このようにすれば、気液分離フィルタを透過したガスを効率よく確実に酸化させることができる。また、燃料電池システムを長時間使用した後に、触媒により酸化しきれなかった成分や液状化した成分が触媒に付着した場合であっても、そのような成分を効率よく、より確実に酸化させて完全に除去することができ、性能を維持することができる。これにより、燃料電池システムの安全性および信頼性をさらに向上させることができる。

#### 【0021】

本発明の燃料電池システムにおいて、燃料電池は、燃料極に液体燃料を供給する直接型燃料電池とすることができる。燃料としては、メタノール、エタノール、ジメチルエーテル、または他のアルコール類、あるいはシクロパラフィン等の液体炭化水素等の有機液体燃料を用いることができる。

#### 【発明の効果】

#### 【0022】

本発明によれば、燃料の損失を抑制し、燃料電池内で発生した副生成物の放出を抑制しつつ、二酸化炭素を電池の外部へ選択的に放出する燃料電池システムが提供される。

#### 【発明を実施するための最良の形態】

#### 【0023】

以下、本発明の実施の形態について、図面を用いて説明する。尚、すべての図面において、同様な構成要素には同様の符号を付し、適宜説明を省略する。

#### 【0024】

はじめに、後述する各実施形態の燃料電池システムに用いる気液分離フィルタの構成について説明する。図13は、気液分離フィルタの積層構造を示す図である。気液分離フィルタ900は、多孔質膜902およびCO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904が積層した構造となっている。図13Aは、気液分離フィルタ900の一例である。多孔質膜902上にCO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904が形成されている。多孔質膜902はCO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904の支持体としての機能を果たす。図13Bは、気液分離フィルタ900の他の例で

ある。この構造ではCO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904の上下に多孔質膜902を配置している。多孔質膜902は一般に機械的強度が充分でない。この構造では、多孔質膜902が露出しないため、優れた耐久性が得られる。これらの構成において、多孔質膜902の膜厚は、たとえば50 $\mu$ m以上500 $\mu$ m以下とする。CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904の膜厚は、たとえば1 $\mu$ m以上5 $\mu$ m以下とする。

#### 【0025】

多孔質膜902は、たとえば、ポリエーテルスルホンやアクリル共重合体などからなる膜である。具体的には、ゴアテックス（ジャパングアテックス(株)社製）（登録商標）、バーサポア（日本ポール社製）（登録商標）、スーポア（日本ポール(株)社製）（登録商標）などが例示される。

#### 【0026】

CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904は、二酸化炭素を選択的に透過させ、メタノールの透過を抑制する膜である。CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904の構成材料としては、ポリテトラフルオロエチレン等のパーフルオロポリマー、ポリメタクリル酸1H、1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H、1H、2H、2H-パーフルオロデシル等のポリフルオロアルキルアクリレート、ポリフッ化ビニル、ポリフッ化エチレンプロピレン等のフルオロオレフィンが挙げられる。また、ポリ塩化ビニリデン、ポリアセタール、ブタジエンとアクリルニトリルとの共重合体樹脂等を用いることもできる。

#### 【0027】

このうち、ポリテトラフルオロエチレン（以下、PTFEという）等のパーフルオロポリマーは、二酸化炭素の選択透過性および成膜特性のバランスに優れる点で好ましく用いられる。多孔質膜902は、二酸化炭素を効率よく透過させる必要があるため、膜厚を薄くすることが望まれる。膜の物性にもよるが、通常、5 $\mu$ m以下の薄膜に形成することが望まれる。PTFE等のパーフルオロポリマーを用いた場合、このような薄膜を安定的に形成することができる。

#### 【0028】

また、ポリメタクリル酸1H、1H-パーフルオロオクチル、ポリアクリル酸1H、1H、2H、2H-パーフルオロデシル等のフルオロアルキルアクリレートポリマーは、成膜特性が良好で、薄膜を容易に形成でき、また、二酸化炭素の選択透過性を有するため、好ましく用いられる。フルオロアルキルアクリレートポリマーは、ポリカルボン酸の一部、または全部を、フルオロアルコールでエステル化することにより得られる。

#### 【0029】

CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904を構成するポリマーの分子量は、好ましくは1000～1,000,000、さらに好ましくは3000～100,000とする。分子量が大きすぎると溶液の調整が困難となり、制限透過層の薄層化が困難となることがある。分子量が小さすぎると十分な制限透過性が得られない場合がある。なお、ここでいう分子量とは数平均分子量をいい、GPC（Gel Permeation Chromatography）により測定することができる。

#### 【0030】

CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904は、上述したポリマーの溶液をスピンコート法により塗布することにより形成される。たとえばパーフルオロヘキサン等のパーフルオロカーボンの溶媒で希釈したポリテトラフルオロエチレンやフルオロオレフィン、ポリフルオロアルキルアクリレート等の溶液を、多孔質膜902上に滴下してスピンコート法により形成することができる。この際、溶液濃度は、好ましくは0.01～10重量%、さらに好ましくは0.1～5重量%程度とする。この範囲とすることにより良好な塗布性能が得られ、優れた膜質の薄膜を得ることができる。なおCO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904の形成方法については、均一な厚さの層が得られる方法であれば制限がなく、スピンコート法以外にもスプレーコート法やディップ法なども用いることができる。スピンコート法を用いた場合、0.01～3 $\mu$ m程度の薄膜からなる制限透過層を制御性良く形成することができる。

#### 【0031】



CO<sub>2</sub>透過性非多孔質膜904を得るためには、上記溶液の塗布後、乾燥して成膜する。乾燥温度は、たとえば室温(25℃)～40℃の範囲とすることが好ましい。乾燥時間は、温度にもよるが、通常、0.5～24時間とする。乾燥は空気中で行っても良いが、窒素等の不活性ガス中で乾燥させてもよい。たとえば、窒素を基板に吹き付けながら乾燥させる窒素ブロー法を用いることもできる。

以下、本発明に係る燃料電池システムの例について説明する。以下の例では、ダイレクトメタノール型燃料電池の例を挙げて説明するが、燃料の種類はメタノールに限られず種々の態様を採用することができる。

#### 【0032】

(第一の実施の形態)

図1は本実施形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。

#### 【0033】

燃料電池システム800は、複数の燃料電池単位セル101と、これらの燃料電池単位セル101から排出されるガスを処理するガス排出部804とを含む。

#### 【0034】

燃料電池単位セル101は、燃料極102および酸化剤極108と、これらの間に設けられた固体電解質膜114を含み、燃料極102には燃料124が、酸化剤極108には酸化剤がそれぞれ供給されて電気化学反応により発電する。燃料電池単位セル101は、燃料極102に液体燃料が供給される直接型の燃料電池である。燃料124としては、メタノール、エタノール、ジメチルエーテル、または他のアルコール類、あるいはシクロパラフィン等の液体炭化水素等の有機液体燃料を用いることができる。有機液体燃料は、水溶液とすることができる。酸化剤としては、通常、空気を用いることができるが、酸素ガスを供給してもよい。

#### 【0035】

燃料容器811は、燃料極102と接して配設されている。燃料容器811に収容された燃料124は、燃料極102に供給される。

#### 【0036】

ガス排出部804は、燃料容器811の開口部に気液分離フィルタ900が配設された構造となっている。気液分離フィルタ900は、枠875およびリベット880によって上記開口部に固定されている。気液分離フィルタ900は、燃料のメタノールの蒸気が膜を介して揮発することを抑えとともに電極反応の副生成物の放出を抑えつつ、電池単位セル101の電気化学反応により生じた二酸化炭素等を選択的に透過させる。燃料電池の運転に有害な二酸化炭素を選択的に透過させることができるので、燃料電池の運転効率を顕著に向上させることができる。

#### 【0037】

気液分離フィルタ900は、前述したように、図13Aや図13Bに示す積層構造を有するものを用いることができる。

#### 【0038】

図2は、燃料電池システム800のガス排出部804の分解図である。気液分離フィルタ900の上下にシール材881が配置され、これらが枠875およびリベット880によって燃料容器811に固定されている。

#### 【0039】

図3は、ガス排出部804の組み立て図である。ガス排出部804は、燃料容器811に着脱可能に取り付けることもできる。

#### 【0040】

次に、図1および図2を参照して、このように構成された燃料電池システム800の作用を説明する。

#### 【0041】

燃料電池単位セル101の電気化学反応により燃料極102で二酸化炭素が発生し、燃料124中に二酸化炭素の気泡が生じる。これにより、燃料容器811内の内圧が上昇す

る。気液分離フィルタ 900 は、燃料 124 中の二酸化炭素を選択的に透過させ、燃料電池システムの外部へ放出する。これにより、二酸化炭素が燃料極 102 に付着して電池効率を低下させたり、二酸化炭素の発生による圧力増加によって燃料容器 811 が破損したりすることを効果的に抑制することができる。

#### 【0042】

(第二の実施の形態)

図 4 は、本実施形態に係る燃料電池システムのガス排出部を示す断面図である。また、図 5 は、この燃料電池システムの斜視図である。

#### 【0043】

ガス排出部 804 は、燃料容器 811 の開口部に気液分離フィルタ 900 および触媒膜 805 が配設された構造となっている。気液分離フィルタ 900 は、枠 875 およびリベット 880 によって上記開口部に固定されている。触媒膜 805 は、気液分離フィルタ 900 の上部の空間に設けられ第二の枠 877 によって固定されている。

#### 【0044】

気液分離フィルタ 900 は、燃料のメタノールの蒸気が膜を介して揮発することを抑えつつ、電池単位セル 101 の電気化学反応により生じた二酸化炭素等を選択的に透過させる。

#### 【0045】

一方、触媒膜 805 は、気液分離フィルタ 900 を透過した微量のメタノールや、ギ酸、ギ酸メチル、ホルムアルデヒド等の微量副生成物を酸化処理し、環境に対する負荷がより小さい物質に変換する。

#### 【0046】

本実施形態では、気液分離フィルタ 900 および触媒膜 805 という機能の異なる 2 種類のフィルタを用いるため、二酸化炭素の放出を抑制しつつ、メタノールの損失および微量副生成物の放出を効果的に抑制することができる。

#### 【0047】

(第三の実施の形態)

図 6 および図 7 は、本実施形態における燃料電池システム 820 の構造を模式的に示した断面図である。本実施形態では、燃料電池単位セル 101 毎にガス処理部 824 が設けられている。燃料電池単位セル 101 は、燃料容器 811 の開口部 813 に設けられ、燃料電池単位セル 101 の固体電解質膜 114 に形成された孔 823 上に気液分離フィルタ 900 が設けられている。このようにすると、ガス処理部 824 を設ける領域を燃料電池単位セル 101 が設けられた領域と別に設ける必要がないため、燃料電池システムをコンパクトに構成でき、システムの小型化を図ることができる。

図 6 の構造では、気液分離フィルタ 900 を介して燃料電池システム内のガスが大気中に放出される。図 7 の構造では、気液分離フィルタ 900 を透過したガスが、さらに触媒膜 805 により酸化処理された上で外部に放出されるようになっている。

#### 【0048】

(第四の実施の形態)

図 8 は、本実施形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。

#### 【0049】

本実施の形態における燃料電池システム 830 は、気液分離フィルタ 900 を透過した未処理ガス 802 をワイヤーウール形状の触媒 835 により処理するように構成されている。触媒 835 は、排出通路 831 の上端に設けられた排気口 807 内に充填されている。

#### 【0050】

本実施の形態において、ワイヤーウール形状の触媒 835 は、第二の実施の形態で説明した触媒膜 805 に含まれる触媒と同様の金属、合金、またはそれらの酸化物とすることができる。

#### 【0051】

ここでは図示を省略しているが、排出通路 831 に酸素供給手段を設け、ここから酸素を供給するようにしてもよい。こうすることにより、触媒膜 805 による酸化を促進することができる。

#### 【0052】

触媒 835 は、燃料容器 811 から排出される未処理ガス 802 を酸化することのできる構成であれば、種々の形状をとり得る。たとえば、上述した金属、合金、またはその他の酸化物により構成されたワイヤを網状に形成したものを用いることもでき、ワイヤ線の形状のまま用いることもできる。

#### 【0053】

このように構成された燃料電池システムにおいて、燃料容器 811 から排出された未処理ガス 802 を加熱部 841 によって加熱することにより、触媒 835 による酸化処理を促進することができ、未処理ガス 802 を効率よく、より確実に酸化させて完全に除去することができ、触媒 835 の性能を維持することができる。これにより燃料電池システム 830 の安全性および信頼性を向上させることができる。

#### 【0054】

上記実施の形態では、触媒による排気混入物質の酸化を促進する酸化促進手段として、酸素供給手段と加熱手段について言及したが、これに限定されるものではなく、他の酸化促進手段として、たとえば、加圧手段、振動手段、攪拌手段などを用いることもできる。

#### 【0055】

また、触媒は、光触媒であってもよく、その場合は、酸化促進手段は、光を照射する手段などであってもよい。光触媒としては、二酸化チタンなどの半導体や、有機金属錯体があり、たとえば、二酸化チタンの微粒子を白金に担持させたものを用いることができる。

#### 【0056】

(第五の実施の形態)

本実施形態に係る燃料電池システムの構造を図 9 に示す。このシステムは、燃料極 102 および酸化剤極 108 および固体電解質膜 114 からなる燃料電池と、ガス排出部とを含む。

#### 【0057】

ガス排出部は以下のように構成されている。燃料容器 811 の開口部に気液分離フィルタ 900 を介して連通する第一の室 920 が設けられ、この第一の室 920 に、連結管 912 を介して連通する第二の室 922 が設けられている。第一の室 920 の外壁の一部は  $\text{CO}_2$  選択透過膜 910 により構成されている。

#### 【0058】

気液分離フィルタ 900 は、図 13A に示すように多孔質膜 902 および  $\text{CO}_2$  透過性非多孔質膜 904 が積層した構造を有し、燃料容器 811 側に多孔質膜 902 が配置されている。多孔質膜 902 は気液分離能を有する膜が好ましく用いられ、その材質や構造の例はすでに述べたとおりであり、ポリエーテルスルホンやアクリル共重合体などからなる膜等が好ましく用いられる。 $\text{CO}_2$  選択透過膜 910 は、図 14 に示すように多孔質膜 908 および  $\text{CO}_2$  透過性非多孔質膜 904 がこの順で積層した構造を有し、第一の室 920 の内側に多孔質膜 908 が配置されている。多孔質膜 908 は、空孔部を多数有する構造体であれば種々のものと用いることができる。たとえば、多孔質アルミナ、金属繊維シート等を用いることができる。

#### 【0059】

気液分離フィルタ 900 を透過したガス、すなわち、二酸化炭素と、微量メタノールおよび微量副生成ガスとを含むガスが、第一の室 920 内部に導かれる。このガスのうち、二酸化炭素は上部の  $\text{CO}_2$  選択透過膜 910 を透過して系外に放出される一方、微量メタノールや微量副生成ガスは連結管 912 を経由して第二の室 922 に導かれる。

第二の室 922 の外壁の一部は触媒膜 930 により構成されている。第二の室 922 内に導かれたガスは、触媒膜 930 により酸化され、環境負荷の小さい化合物に変換された上で系外へ放出される。

本実施形態によれば、二酸化炭素を放出しつつ、メタノールの損失および微量副生成物の放出を効果的に抑制することができる。

【0060】

(第六の実施の形態)

図10は、本実施形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した平面図である。図11は、この燃料電池システムのA-A断面図である。

【0061】

燃料電池システム850は、複数の燃料電池単位セル101と、複数の燃料電池単位セル101に配して設けられた燃料容器811と、燃料容器811に燃料を供給するとともに、燃料容器811を循環した燃料を回収する燃料タンク851とを含む。燃料容器811と燃料タンク851とは、燃料通路854および燃料通路855を介して連結される。ガス排出部804は、燃料通路855上に設けられる。

【0062】

本実施の形態において、燃料容器811には、燃料通路854を介して燃料が供給される。燃料は、燃料容器811内に設けられた複数の仕切り板853に沿って流れ、複数の燃料電池単位セル101に順次供給される。複数の燃料電池単位セル101を循環した燃料は、燃料通路855を介して燃料タンク851に回収される。

【0063】

尚、燃料タンク851は、燃料容器811を含む燃料電池システム850本体と着脱可能に構成されたカートリッジとすることもできる。

【0064】

本実施の形態の燃料電池システム850において、燃料通路855の開口部856には気液分離フィルタ900を介してガス排出部804が配設されている。ガス排出部804は、図11に示す構造を有する。ガス排出部804内部の空間は、気液分離フィルタ900によって区画されており、燃料通路855内のガスが気液分離フィルタ900を透過した後、排出口807より処理済みガス806が外部に放出されるように構成されている。ガス排出部804は、所定の固定具により燃料通路855に取り付けられており、燃料通路855に着脱可能に構成されている。なお、ここではガスが図11矢印の方向に排出されるようになっているが、排出口の形状を変えて排出される向きを任意に設計することができる。

【0065】

本実施形態によれば、二酸化炭素が燃料極102に付着して電池効率を低下させたり、二酸化炭素の発生による圧力増加によって燃料容器811が破損したりすることを効果的に抑制することができる。

【0066】

(第七の実施の形態)

図12Aは、本実施形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した部分断面平面図である。図12Bは、この燃料電池システムのC-C断面図である。

【0067】

燃料電池システム860は、複数の燃料電池単位セルに配して設けられた燃料容器811と、燃料容器811に燃料を供給するとともに、燃料容器811を循環した燃料を回収する燃料タンク851とを含む。燃料容器811と燃料タンク851とは、燃料通路854および燃料通路855を介して連結される。ガス排出部861は、燃料通路855上に設けられる。

【0068】

ガス排出部861の断面構造を図12Bに示す。燃料容器811内のガスは、気液分離フィルタ900を介して外部に放出されるように構成されている。ここではガスが図12B矢印の方向に排出されるようになっているが、排出口の形状を変えて排出される向きを任意に設計することができる。

【0069】

本実施形態によれば、ガス排出部を設けることによる占有スペースの増加を最小限に抑えることができる。

#### 【実施例】

##### 【0070】

##### 実施例 1

図 1～図 3 に示した構成の燃料電池システム 800 を作製し、評価を行った。気液分離フィルタ 900 は、図 13A の構造のものとを用いた。多孔質膜 902 は、厚み  $50\mu\text{m}$  の多孔質 PTFE（孔径  $1\mu\text{m}$ ）を用いた。CO<sub>2</sub> 透過性非多孔質膜 904 は、厚み  $1\mu\text{m}$  の非多孔質 PTFE とした。厚みは、いずれも平均値を示す。気液分離フィルタ 900 は、多孔質膜 902 上に PTFE 含有液をスピンコートした後、室温で乾燥させることにより作製した。

##### 【0071】

本実施例で用いた非多孔質 PTFE のガス透過特性は以下のとおりである。

CO<sub>2</sub> : 280, 000 cB

O<sub>2</sub> : 99, 000 cB

N<sub>2</sub> : 49, 000 cB

メタン : 34, 000 cB

ここで、cB は "centi-BARRIER" なる単位を意味し、その数値は、同一条件で測定を行ったときの膜を透過するガス流量を表す。この非多孔質 PTFE は、CO<sub>2</sub> を選択的に透過する膜であることがわかる。

なお、燃料電池部分の触媒は、燃料極では白金／ルテニウム、酸化剤極では白金とした。固体電解質膜の構成材料は、ナフィオン（登録商標）とした。

##### 【0072】

##### 実施例 2

CO<sub>2</sub> 透過性非多孔質膜 904 の構成材料として、ポリメタクリル酸 1H、1H-パーフルオロオクチルを用いたこと以外は実施例 1 と同様にして気液分離フィルタ 900 を作製し、燃料電池システムを構成した。CO<sub>2</sub> 透過性非多孔質膜 904 は、ポリメタクリル酸 1H、1H-パーフルオロオクチルのパーフルオロヘキサン溶液を上記多孔質膜 902 上にスピンコートすることにより形成した。

##### 【0073】

##### 比較例 1

2 層構造の気液分離フィルタ 900 に代え、厚み  $50\mu\text{m}$  の多孔質 PTFE（孔径  $1\mu\text{m}$ ）のみからなる気液分離フィルタを配設したこと以外は実施例 1 と同様にして燃料電池システムを構成した。

##### 【0074】

実施例および比較例の燃料電池システムを、以下の運転条件で運転した。

##### 【0075】

燃料：メタノールと水とからなる混合溶液

運転温度：40℃

出力（電流密度）：50 mA / cm<sup>2</sup>

上記条件で 5 時間連続運転した。実施例 1、2 については、5 時間運転後も顕著な出力の低下は見られなかったのに対し、比較例 1 では、出力が大きく低下した。実施例 1、2 では燃料容器 811 の内部に二酸化炭素の気泡が見られなかったのに対し、比較例 1 では、燃料容器 811 内部に二酸化炭素の気泡が確認された。

##### 【0076】

また、運転中、気液分離フィルタ 900 から排出されるガス中のメタノールの濃度をガスクロマトグラフィで測定した。実施例 1、2 ではメタノール濃度が  $5\mu\text{g/L}$  以下であったのに対し、比較例 1 では、 $10\sim 15\mu\text{g/L}$  以下であった。

##### 【0077】

以上から、実施例記載の構成とすることにより、二酸化炭素を燃料電池システムの外部

に効率良く放出させることができ、燃料電池の効率を向上させることができることが明らかになった。

【図面の簡単な説明】

【0078】

- 【図1】実施の形態に係る燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。
- 【図2】燃料電池システムのガス排出部の分解図である。
- 【図3】ガス排出部の組み立て図である。
- 【図4】実施の形態に係る燃料電池システムのガス排出部を示す断面図である。
- 【図5】実施の形態に係る燃料電池システムの斜視図である。
- 【図6】実施の形態に係る燃料電池システムのガス排出部を示す断面図である。
- 【図7】実施の形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。
- 。 【図8】実施の形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。
- 。 【図9】実施の形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した断面図である。
- 。 【図10】実施の形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した平面図である。
- 【図11】図10の燃料電池システムのA-A断面図である。
- 【図12】実施の形態における燃料電池システムの構造を模式的に示した平面図である。
- 【図13】気液分離膜の構造の一例を示す図である。
- 【図14】CO<sub>2</sub>選択透過膜の構造の一例を示す図である。

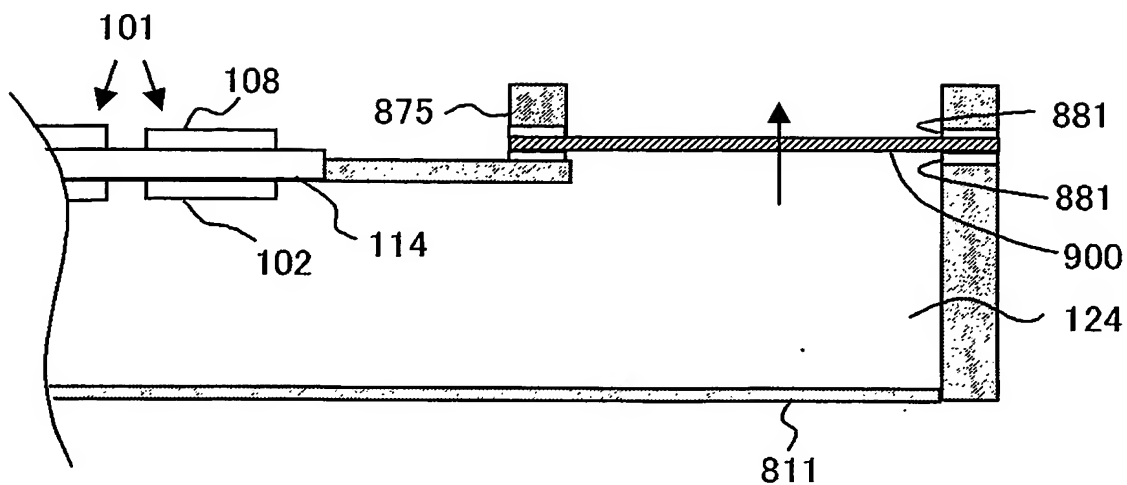
【符号の説明】

【0079】

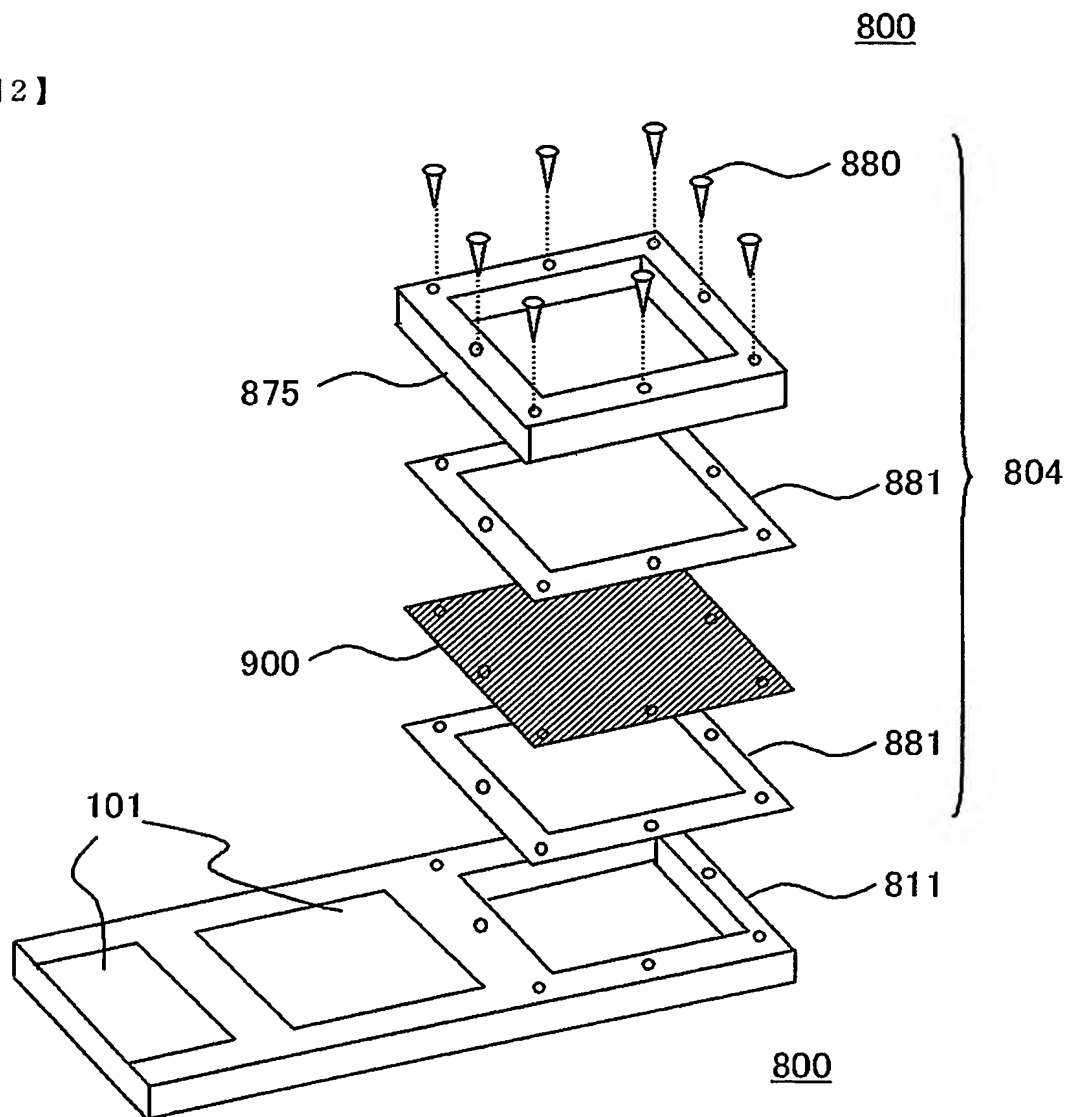
- 101 燃料電池単位セル
- 102 燃料極
- 108 酸化剤極
- 114 固体電解質膜
- 124 燃料
- 800 燃料電池システム
- 801 容器（排出通路）
- 801a 上室
- 801b 下室
- 802 未処理ガス
- 804 ガス排出部
- 805 触媒膜
- 806 処理済みガス
- 807 排気口（排出通路）
- 809 取り込み口
- 810 燃料電池システム
- 811 燃料容器
- 813 開口部
- 900 気液分離フィルタ
- 816 酸素
- 817 酸素供給口（酸素供給手段）
- 820 燃料電池システム
- 823 孔
- 824 ガス処理部
- 830 燃料電池システム

8 3 1 排出通路  
8 3 5 触媒  
8 4 0 燃料電池システム  
8 4 1 加熱部 (酸化促進手段)  
8 5 0 燃料電池システム  
8 5 1 燃料タンク  
8 5 3 仕切り板  
8 5 4 燃料通路  
8 5 5 燃料通路  
8 5 6 開口部  
8 5 8 取り込み口  
8 6 0 燃料電池システム  
8 6 1 ガス排出部  
8 7 3 第 1 の容器  
8 7 5 枠  
8 7 7 第二の枠  
8 7 9 天板  
8 8 0 リベット  
8 8 1 シール材  
9 0 0 気液分離フィルタ  
9 0 2 多孔質膜  
9 0 4 C O <sub>2</sub> 透過性非多孔質膜  
9 0 8 多孔質膜  
9 1 0 C O <sub>2</sub> 選択透過膜  
9 1 2 連結管  
9 2 0 第一の室  
9 2 2 第二の室  
9 3 0 触媒膜

【書類名】 図面  
【図 1】

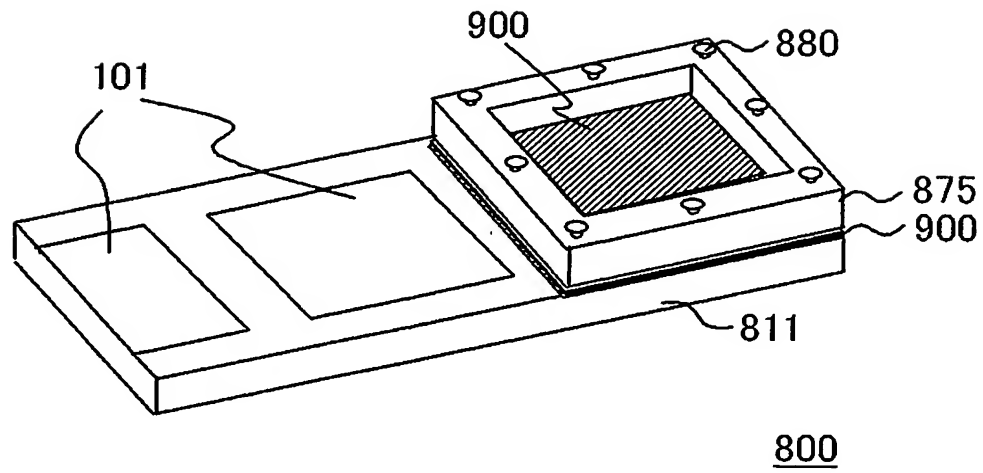


【図 2】

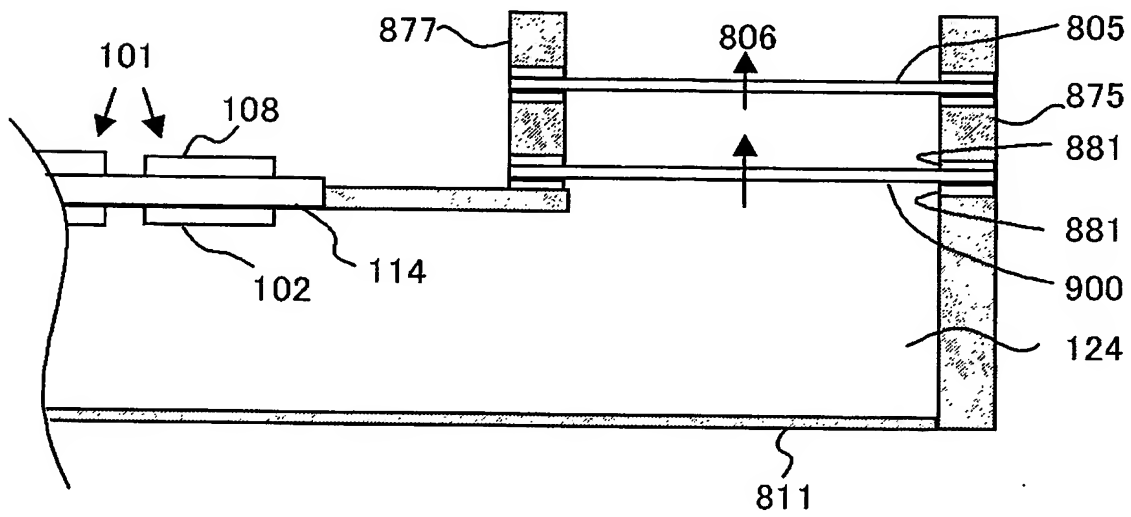




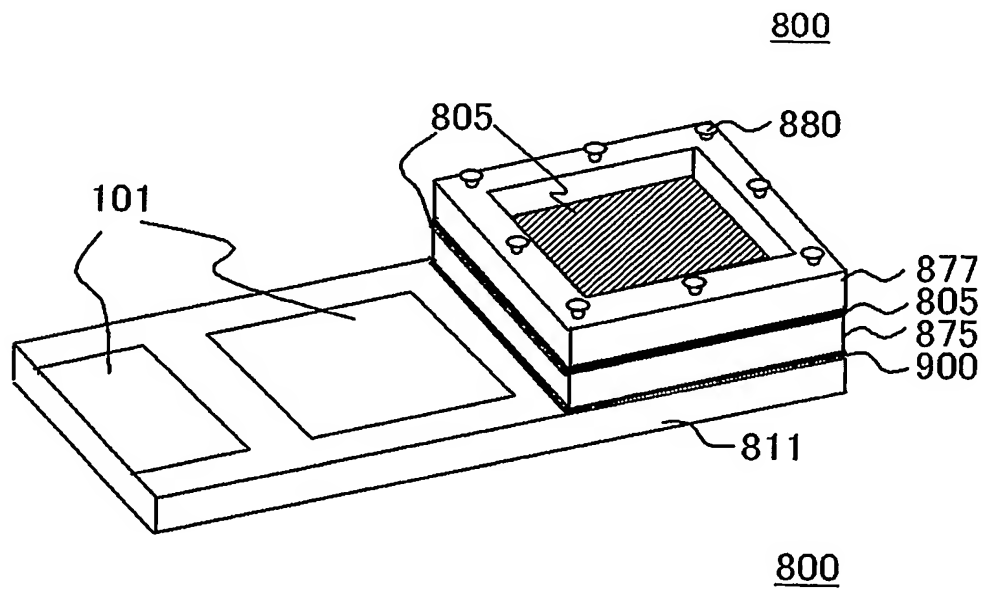
【図 3】



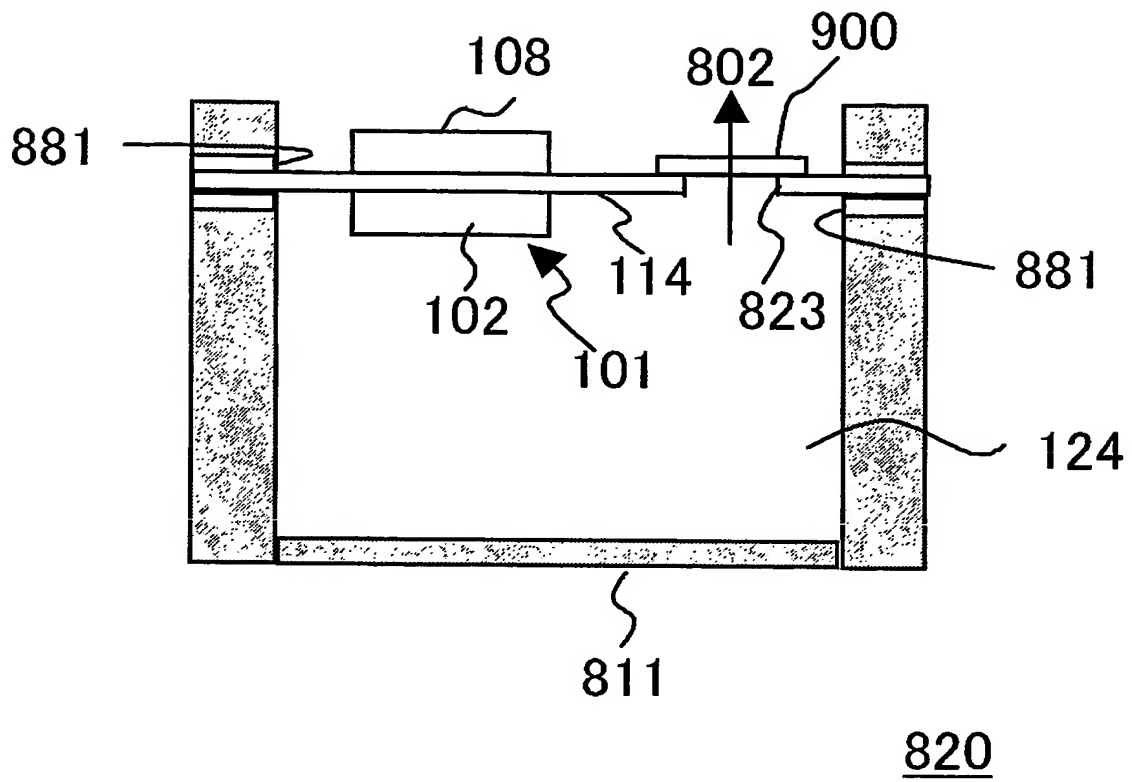
【図 4】



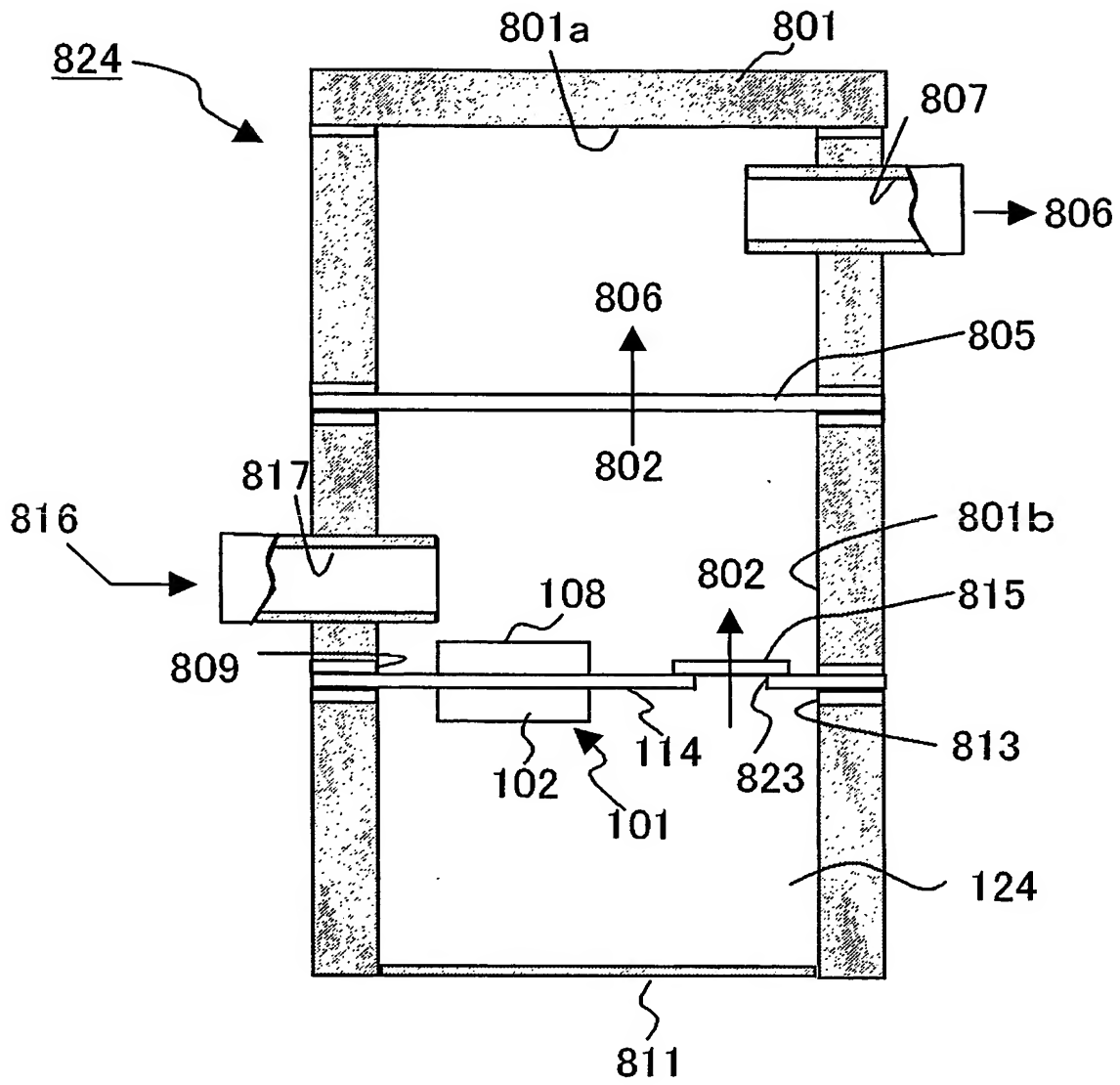
【図 5】



【図 6】

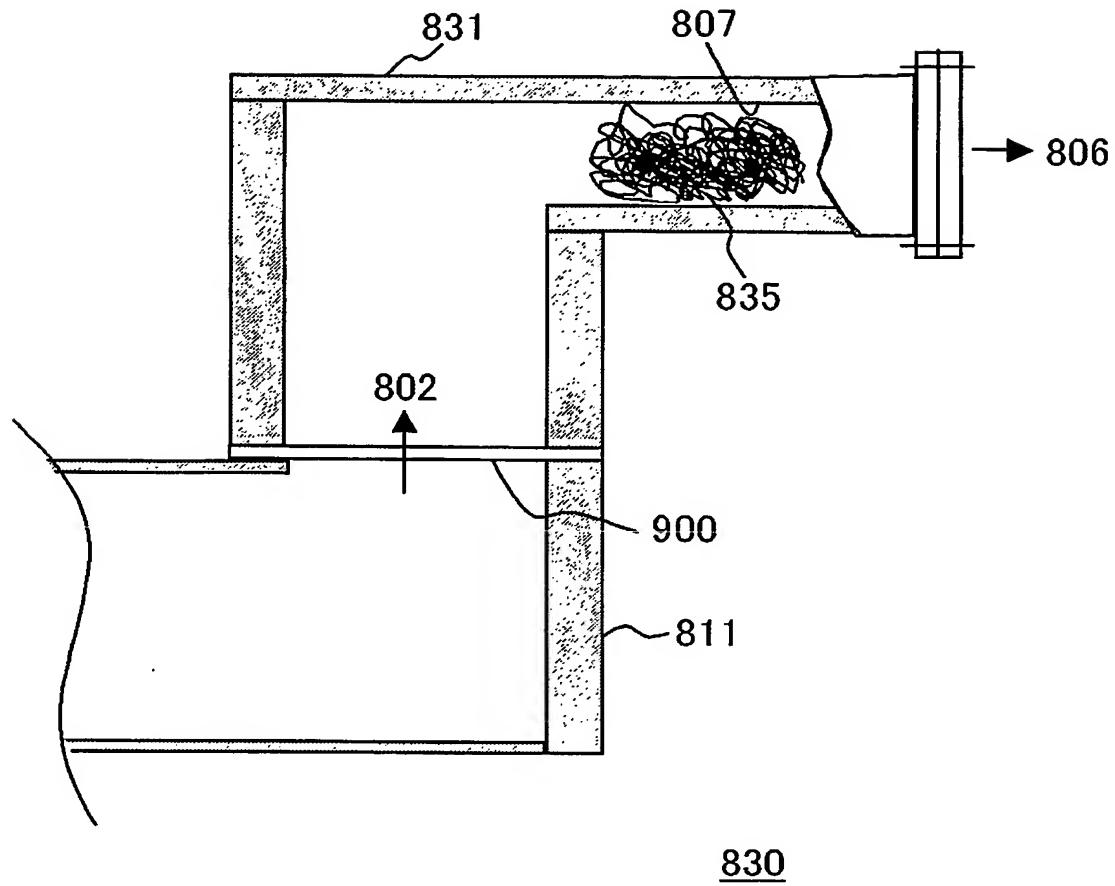


【図 7】

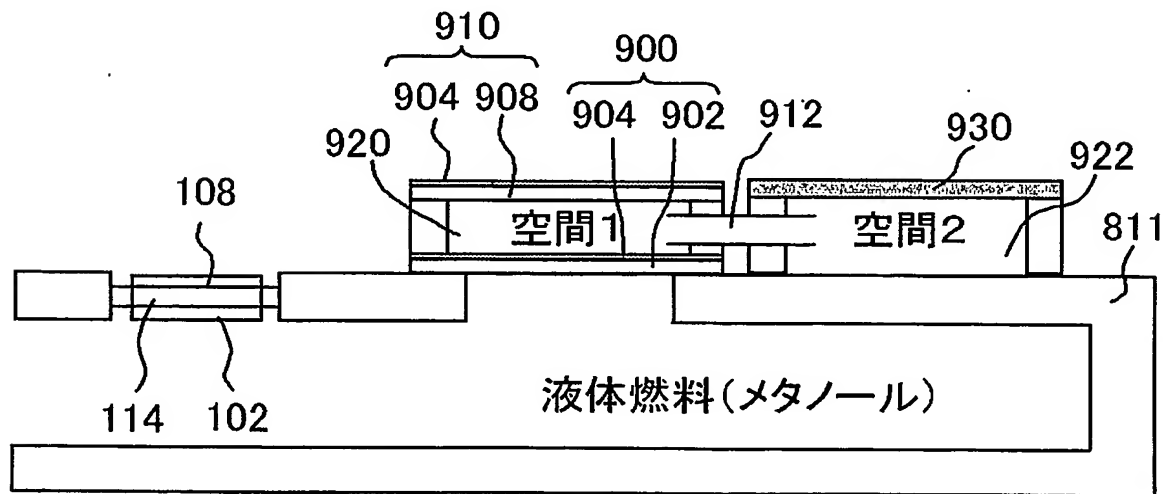


820

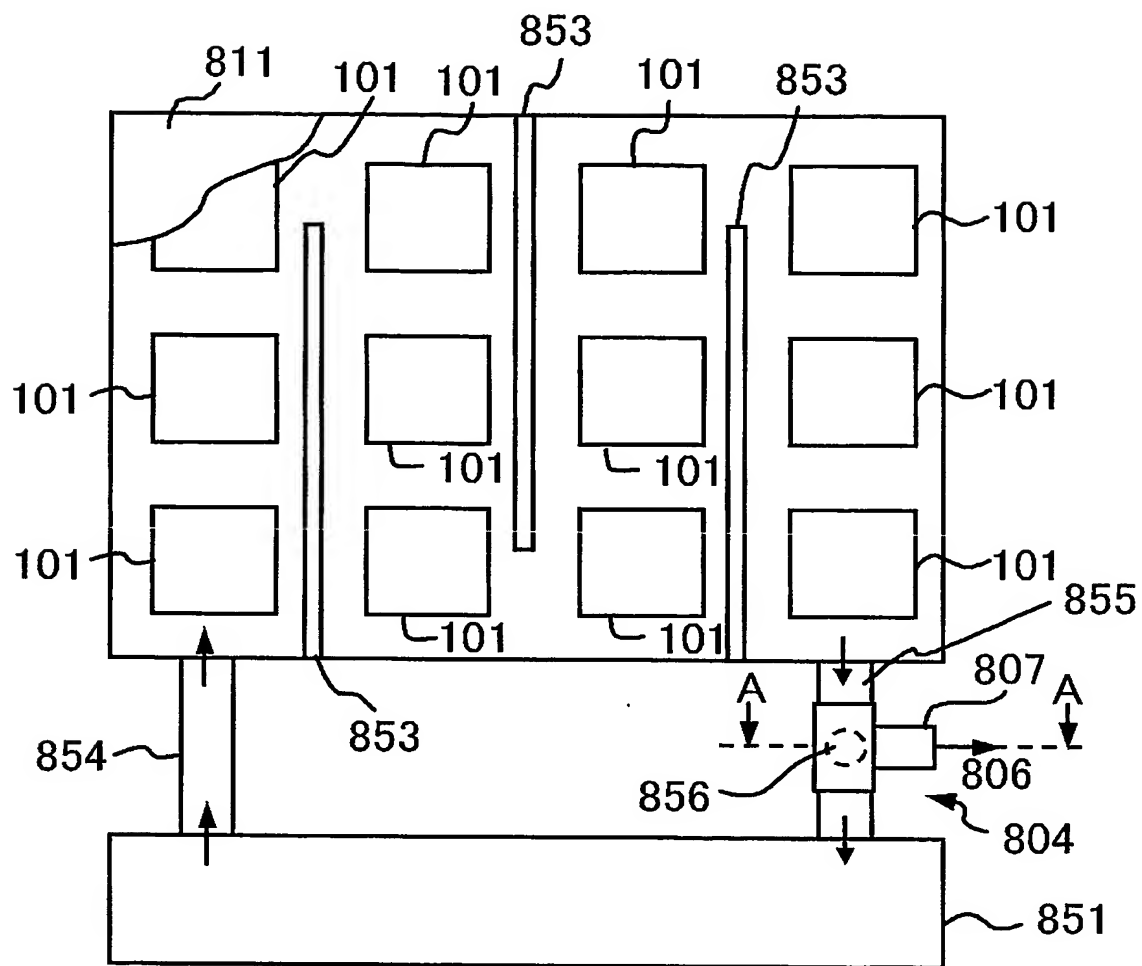
【図 8】



【図 9】

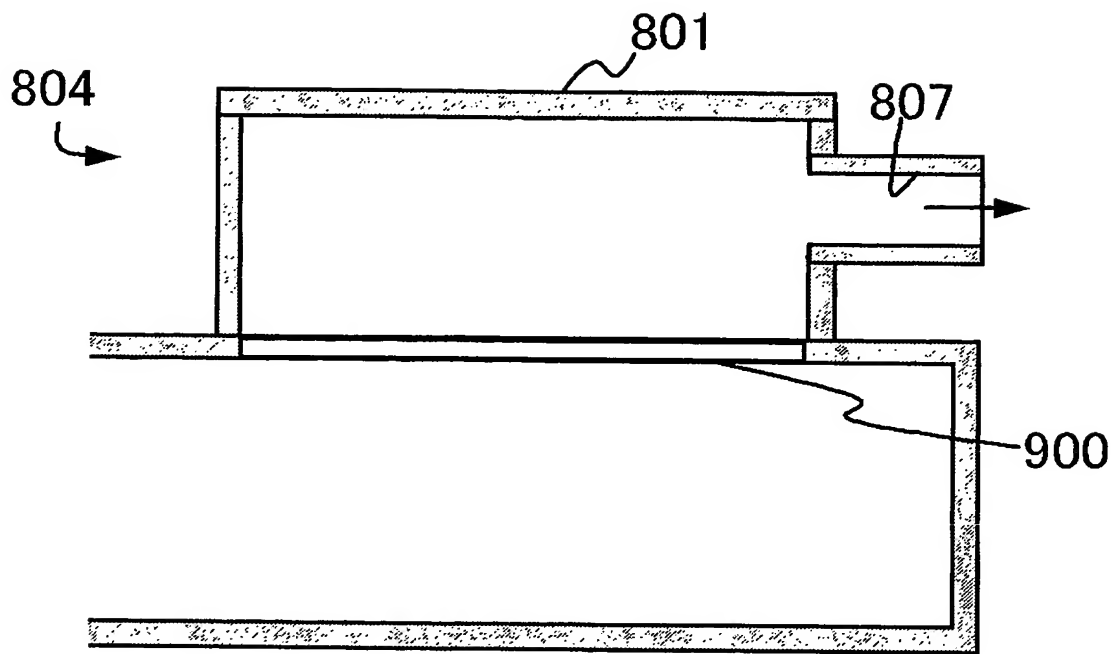


【図 10】

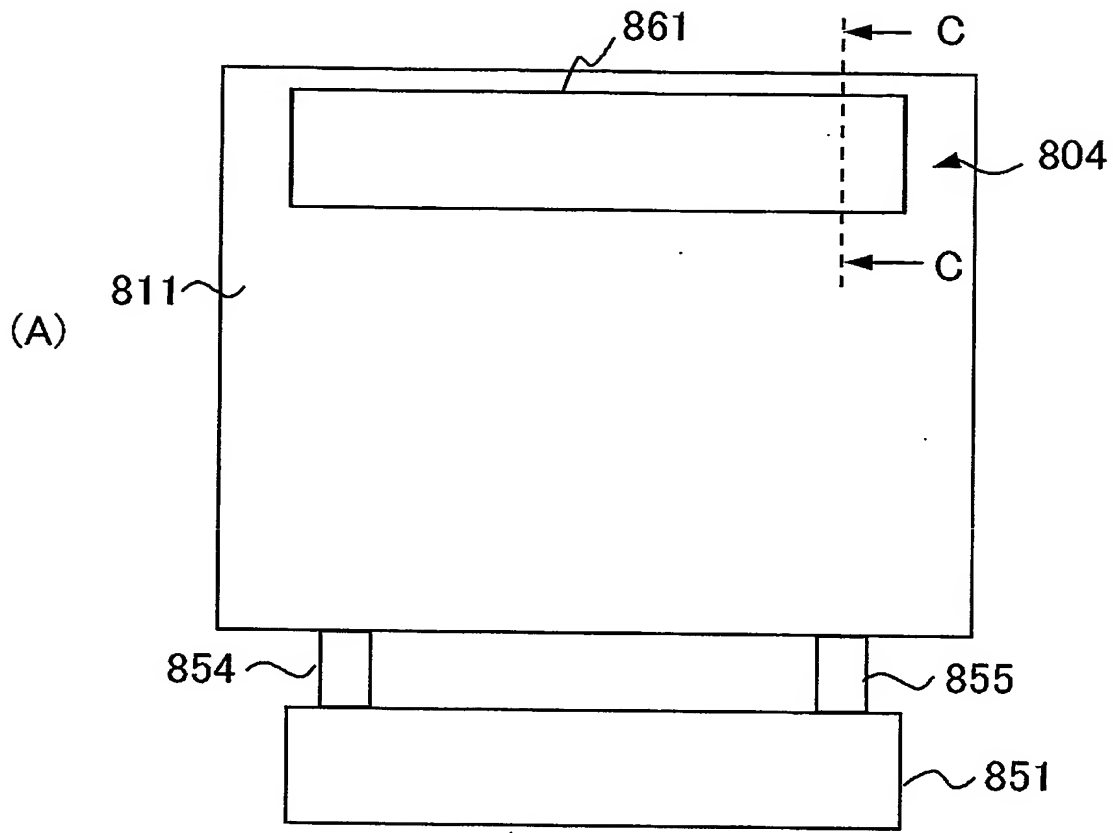


850

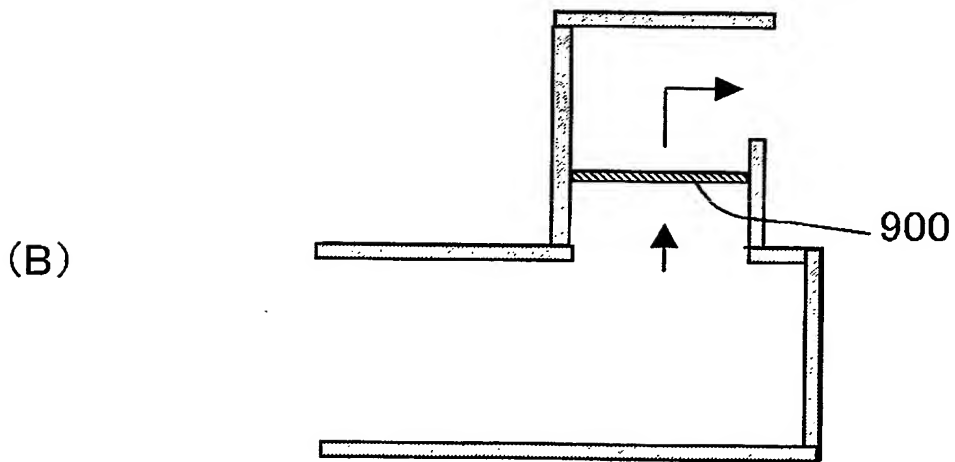
【図 11】



【図 12】

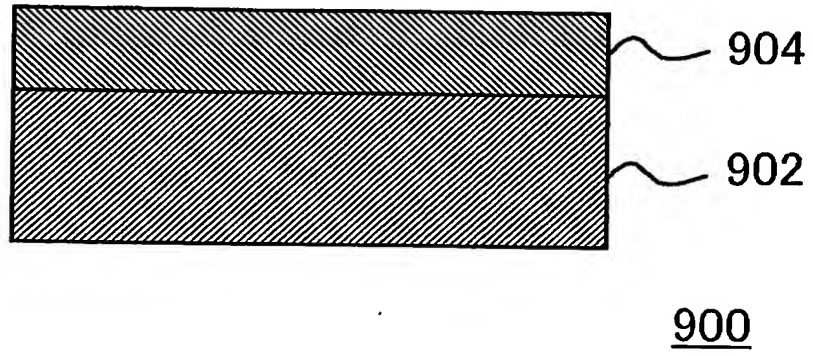


860

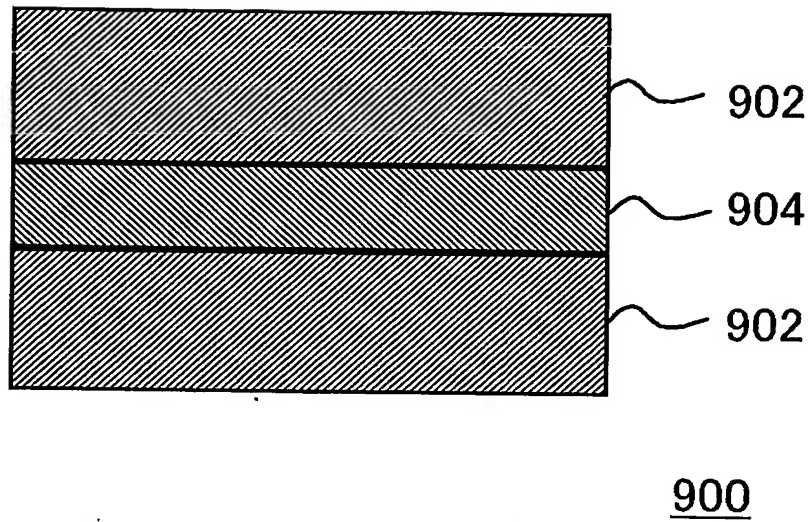


【図 13】

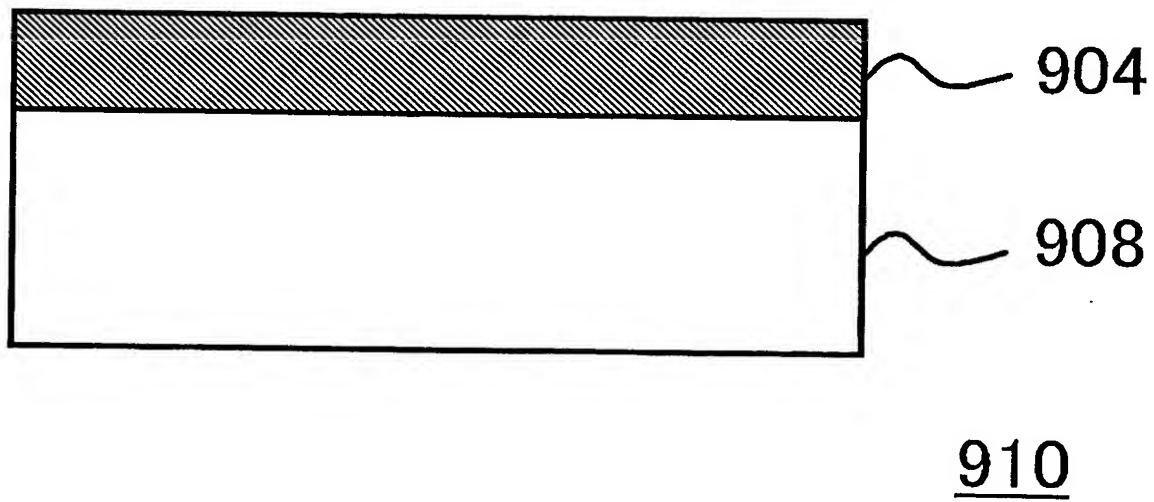
(A)



(B)



【図 14】





【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 燃料の損失を抑制し、燃料電池内で発生した副生成物の放出を抑制しつつ、二酸化炭素を電池の外部へ選択的に放出する燃料電池システムを提供する。

【解決手段】

燃料容器 8 1 1 の開口部に気液分離フィルタ 9 0 0 を設ける。気液分離フィルタ 9 0 0 は、多孔質 P T F E 上に、二酸化炭素選択透過性を有する非多孔質 P T F E が積層した構造を有する。

【選択図】 図 1

特願 2 0 0 3 - 2 9 7 0 3 5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [ 0 0 0 0 0 4 2 3 7 ]

1. 変更年月日	1 9 9 0 年 8 月 2 9 日
[変更理由]	新規登録
住 所	東京都港区芝五丁目 7 番 1 号
氏 名	日本電気株式会社

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning  
Operations and is not part of the Official Record**

**BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

- ☐ BLACK BORDERS
- ☐ IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- ☒ FADED TEXT OR DRAWING
- ☒ BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING
- ☐ SKEWED/SLANTED IMAGES
- ☐ COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS
- ☐ GRAY SCALE DOCUMENTS
- ☒ LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT
- ☐ REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY
- ☐ OTHER: \_\_\_\_\_

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.**